

การจำลองเครื่องปฏิกรณ์ฟลูอิดไชน์เบดแบบหมุนเวียนสำหรับกระบวนการเผาไหม้แบบเคมีคอลลูบปิง ด้วยโปรแกรมจำลองกระบวนการแอสเพนพลัส

Circulating fluidized bed simulation for chemical looping combustion process by using Aspen Plus

ธนภัทร วโนทยาโรจน์^{1,2}, เบญจพล เฉลิมสินสุวรรณ^{1,2} และ พรพจน์ เปี่ยมสมบูรณ์^{1,2,*}

Thanapat Wanotayaroj^{1,2}, Benjapon Chalermssinuwana^{1,2} and Pornpote Piumsomboon^{1,2,*}

¹ ภาควิชาเคมีเทคนิค คณะวิทยาศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย 254 ถนนพญาไท แขวงวังใหม่ เขตปทุมวัน กรุงเทพมหานคร 10330

² ศูนย์ความเป็นเลิศด้านเทคโนโลยีปิโตรเคมีและวัสดุ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย 254 ถนนพญาไท แขวงวังใหม่ เขตปทุมวัน กรุงเทพมหานคร 10330

*ติดต่อ E-mail: pornpote.p@chula.ac.th, เบอร์โทรศัพท์: 02-218-7676

บทคัดย่อ

เนื่องจากปัญหาภาวะโลกร้อน เทคนิคที่สามารถดักจับแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์จากการเผาไหม้เชื้อเพลิงฟอสซิล ออกสู่บรรยากาศกำลังเป็นที่ได้รับความสนใจ กระบวนการเผาไหม้แบบเคมีคอลลูบปิง เป็นเทคนิคหนึ่งของการลดแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์ ซึ่งประกอบด้วยสองกระบวนการหลัก เครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงที่เกิดปฏิกิริยาการเผาไหม้ระหว่างตัวพาออกซิเจนกับเชื้อเพลิง ทำให้ได้ผลิตภัณฑ์เป็นแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์และไอน้ำ ซึ่งสามารถแยกออกจากกันด้วยวิธีการควบแน่น ตัวพาออกซิเจนที่สูญเสียออกซิเจนจะถูกคืนสภาพด้วยการทำปฏิกิริยาออกซิเดชันกับอากาศในเครื่องปฏิกรณ์อากาศ และถูกส่งกลับไปเครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิง ในงานวิจัยนี้ เป็นการสร้างแบบจำลองของเครื่องปฏิกรณ์ฟลูอิดไชน์เบดแบบหมุนเวียนสำหรับกระบวนการเผาไหม้แบบเคมีคอลลูบปิงด้วยโปรแกรมจำลองกระบวนการแอสเพนพลัส เครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงดำเนินการในส่วนท่อดาวเนอร์ภายใต้สภาวะฟลูอิดเซชันแบบฟองแก๊สสำหรับเครื่องปฏิกรณ์อากาศดำเนินการในส่วนท่อไรเซอร์ในสภาวะฟลูอิดเซชันแบบความเร็วสูง แบบจำลองที่สร้างขึ้นมีจุดเด่นที่แตกต่างจากงานวิจัยอื่นที่ผ่านมาคือ เป็นแบบจำลองของเครื่องปฏิกรณ์ฟลูอิดไชน์เบดแบบหมุนเวียน มีการเชื่อมต่อระหว่างเครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงและเครื่องปฏิกรณ์อากาศ โดยพิจารณาถึงผลของอุทกพลศาสตร์และจลนพลศาสตร์ที่ต่างกันของทั้งสองเครื่องปฏิกรณ์ ผลที่ได้จะให้ข้อมูลที่สอดคล้องกับการดำเนินงานจริงมากขึ้น อันจะเป็นประโยชน์ต่อการพัฒนาเครื่องปฏิกรณ์สำหรับกระบวนการเผาไหม้แบบเคมีคอลลูบปิงต่อไป

คำสำคัญ: กระบวนการเผาไหม้แบบเคมีคอลลูบปิง, เครื่องปฏิกรณ์ฟลูอิดไชน์เบดแบบหมุนเวียน, โปรแกรมจำลองกระบวนการแอสเพนพลัส

Abstract

Because of the global warming, techniques that can trap the releasing of carbon dioxide from the combustion of fossil fuel into the atmosphere have been receiving attention. Chemical looping combustion (CLC) is a technique for reducing carbon dioxide. It consists of two main processes: in the fuel reactor, the coming fuel reacts with solid metal oxide particles to produce CO₂ and H₂O vapor which later can be easily separated using condensation. The reduced solid metal sends to the air reactor for regenerating via an oxidation reaction with air before returned them to the fuel reactor. In this study, a model of a circulating fluidized bed for chemical looping combustion process has been developed in Aspen Plus. The fuel reactor (or downer) operates in bubbling regime where the air reactor (or riser) operates in fast fluidization regime. The novelty of this study is that the developed model of CLC was connecting the two fluidized beds which were operated at different hydrodynamics regimes and kinetics. The results give more insight for operating the CLC.

Keywords: CO₂, Chemical looping combustion, Circulating fluidized bed reactors, Aspen Plus simulation program

บทนำ

จากปัญหาการเปลี่ยนแปลงสภาพภูมิอากาศทำให้เทคโนโลยีการดักจับแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์จากการเผาไหม้เชื้อเพลิงฟอสซิลในภาคผลิตกระแสไฟฟ้าและโรงงานอุตสาหกรรมได้รับความสนใจอย่างมาก ในงานวิจัยนี้เป็นการศึกษาระบบการเผาไหม้แบบเคมีคอลลูบปิง ซึ่งเป็นเทคนิคหนึ่งของการดักจับแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์ โดยจะศึกษาถึงปัจจัยที่เกี่ยวข้องที่มีผลต่อการตอบสนองต่อการดำเนินการกระบวนการเผาไหม้แบบเคมีคอลลูบปิงในเครื่องปฏิกรณ์ฟลูอิดไคซ์เบด เพื่อนำข้อมูลไปใช้เพิ่มประสิทธิภาพในการทำงานของเครื่องปฏิกรณ์และการออกแบบระบบควบคุมต่อไป

กระบวนการเผาไหม้แบบเคมีคอลลูบปิง ประกอบด้วยเครื่องปฏิกรณ์ 2 เครื่อง คือเครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงและเครื่องปฏิกรณ์อากาศ ภายในเครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงเกิดปฏิกิริยาเผาไหม้ระหว่างโลหะออกไซด์กับเชื้อเพลิงฟอสซิลผลิตภัณฑ์ที่ได้คือแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์และไอน้ำ สามารถแยกออกจากกันได้ง่ายด้วยวิธีการควบแน่น โลหะออกไซด์ที่เกิดปฏิกิริยาแล้วจะถูกแยกออกจากวัฏภาคแก๊สด้วยไซโคลอน โดยอาศัยหลักของแรงเหวี่ยงหนีศูนย์กลางและแรงโน้มถ่วง จากนั้น โลหะออกไซด์จะถูกป้อนเข้าเครื่องปฏิกรณ์อากาศเพื่อคืนสภาพโดยทำปฏิกิริยากับออกซิเจนกับอากาศ โลหะออกไซด์ที่คืนสภาพแล้วจะถูกส่งกลับไปทำปฏิกิริยาเผาไหม้ในรอบใหม่ต่อไป เพื่อให้ดำเนินการเคมีคอลลูบปิงเป็นไปอย่างต่อเนื่อง เทคโนโลยีที่ใช้ในการสร้างเครื่องปฏิกรณ์คือเครื่องปฏิกรณ์ฟลูอิดไคซ์เบดแบบหมุนเวียน โดยฝั่งไรเซอร์จะเป็นเครื่องปฏิกรณ์อากาศดำเนินการในสถานะฟลูอิดไคซ์เบดความเร็วสูง และฝั่งดาวเนอร์จะเป็นเครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงในสถานะฟลูอิดไคซ์เบดแบบฟองแก๊ส

ในงานวิจัยที่ผ่านมา Jafari และคณะ [1] ได้สร้างแบบจำลองกระบวนการฟลูอิดไคซ์เบดสถานะฟองแก๊ส ด้วยโปรแกรมจำลองกระบวนการ แอสเพนพลัส จากแนวคิดนี้ ต่อมา Porrazzo และคณะ [2] ได้นำมาใช้พัฒนาแบบจำลองกระบวนการเครื่องปฏิกรณ์แบบฟลูอิดไคซ์เบดสำหรับกระบวนการเผาไหม้แบบเคมีคอลลูบปิง โดยพิจารณาถึง

ผลของอุทกพลศาสตร์และจลนพลศาสตร์ และอ้างอิงตัวแปรจลนพลศาสตร์จากการทดลองของ Abad และ Ryu [3, 4] และใช้แบบจำลองแกนหดตัว (Shrinking core model) ตามสมการของ Levenspiel [5] รวมถึงวิธีของ Kunii และ Levenspiel [6] ในการคำนวณพารามิเตอร์ที่ใช้ในการออกแบบเครื่องปฏิกรณ์ฟลูอิดซ์เบด

ในงานวิจัยนี้เป็นการพัฒนาต่อยอดจากงานวิจัยของ Porrazzo และคณะ [2] ที่ได้สร้างแบบจำลองเครื่องปฏิกรณ์ฟลูอิดซ์เบดสำหรับกระบวนการเผาไหม้แบบเคมีคอลลูบิงโดยแยกกันระหว่างส่วนเครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงและเครื่องปฏิกรณ์อากาศ ทำให้ไม่สามารถแสดงความสัมพันธ์ระหว่างเครื่องปฏิกรณ์ทั้งสองเครื่องได้ ดังนั้น ในงานวิจัยนี้ จึงได้ทำการจำลองให้เครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงและเครื่องปฏิกรณ์อากาศเชื่อมต่อกัน เพื่อให้สอดคล้องกับสภาพจริงและเพื่อศึกษาการทำงานของกระบวนการเผาไหม้แบบเคมีคอลลูบิงภายใต้การดำเนินการในสภาวะฟลูอิดซ์เบดแบบหมุนเวียน เพื่อหาค่าที่เหมาะสมของปริมาณการป้อนเชื้อเพลิงที่จะส่งผลกระทบต่อร้อยละการเปลี่ยนแปลงของแก๊สมีเทน ร้อยละการเปลี่ยนแปลงของโลหะ निकเกิลออกไซด์ สัดส่วนช่องว่างจากการขยายตัวของเบด ร้อยละการเปลี่ยนแปลงของอากาศ ร้อยละการเปลี่ยนแปลงของโลหะ निकเกิล และสัดส่วนโดยโมลของแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์

อุปกรณ์และวิธีการทดลอง

อุปกรณ์

ในงานวิจัยนี้ได้ใช้โปรแกรมแอสเพนพลัส V10 (Aspen Plus V10) ซึ่งเป็นโปรแกรมที่ใช้สำหรับการจำลองกระบวนการทางวิศวกรรมเคมี โดยสามารถที่จะสร้างแบบจำลองสำเร็จรูปและแบบจำลองสำหรับผู้ใช้งาน ผ่านทางการเขียนโปรแกรมย่อย (Subroutine) ด้วยภาษาฟอร์แทรน (Fortran)

กระบวนการเคมีคอลลูบิง

งานวิจัยนี้เป็นการสร้างแบบจำลองเครื่องปฏิกรณ์ฟลูอิดซ์เบดแบบหมุนเวียนสำหรับกระบวนการเผาไหม้แบบเคมีคอลลูบิงด้วยโปรแกรมจำลองกระบวนการแอสเพนพลัส ซึ่งแบ่งออกเป็น 2 ส่วน ส่วนแรกคือเครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงที่ดำเนินการในสภาวะฟลูอิดซ์เบดแบบฟองแก๊สจะเกิดปฏิกิริยาในส่วนท่อดาวเนอร์ ส่วนที่สองคือเครื่องปฏิกรณ์อากาศที่ดำเนินการในสภาวะฟลูอิดซ์เบดแบบความเร็วสูงจะเกิดปฏิกิริยาในส่วนท่อโรเซอร์ ชุดสมการต่างๆ นำมาจากงานวิจัยของ Porrazzo และคณะ [2]

1. เครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิง

เครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงที่ดำเนินการในสภาวะฟลูอิดซ์เบดแบบฟองแก๊สประกอบด้วยสองวัฏภาค [6] ได้แก่ วัฏภาคฟองแก๊ส (Bubble phase) และวัฏภาคอิมัลชัน (Emulsion phase) ซึ่งเป็นช่วงการไหลที่ความเร็วป้อนเข้า (Superficial gas velocity) มีค่าสูงกว่าความเร็วต่ำสุดของการเกิดฟลูอิดซ์เบด (Minimum fluidization gas velocity) แต่มีค่าต่ำกว่าความเร็วปลายของอนุภาค (Particle terminal velocity) ซึ่งทำให้สองวัฏภาคมีความแตกต่างกันตรงที่สัดส่วนของปริมาณแก๊สต่อปริมาณของแข็ง โดยในวัฏภาคฟองแก๊สนั้น จะมีสัดส่วนของปริมาณแก๊สต่อปริมาณของแข็งที่สูงกว่าในวัฏภาคอิมัลชัน กำหนดให้ในวัฏภาคฟองแก๊สมีการเปลี่ยนแปลงของมวลสารตามแนวแกนความสูงของเบด และวัฏภาคอิมัลชันเกิดการผสมกันอย่างสมบูรณ์ (Perfect mixing) ตามสมมติฐานของแบบจำลองกระบวนการที่อ้างอิงจาก [7] ดังต่อไปนี้

- เส้นผ่านศูนย์กลางของฟองแก๊สมีขนาดคงที่ตลอดทั้งความสูงเบด
- เครื่องปฏิกรณ์ดำเนินการในสภาวะอุณหภูมิคงที่ (Isothermal condition)
- ละเลยการเปลี่ยนแปลงของมวลสารตามแนวแกนรัศมีของเบด

ในงานวิจัยนี้ ได้ใช้ข้อมูลในตารางที่ 1 ในการสร้างแบบจำลองเครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิง ซึ่งเป็นพารามิเตอร์ที่สำคัญต่อการออกแบบเครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงที่ดำเนินการในสภาวะฟลูอิดเซชันแบบเกิดฟองแก๊ส

ตารางที่ 1 ตัวแปรที่ใช้ในการออกแบบเครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิง

Name	Parameter	Value	Units	Source
Operating temperature	T	750	°C	Ref [4]
Operating pressure	P	1	atm	Ref [2]
Fuel density	ρ_{fuel}	0.191	kg/m ³	Aspen Plus database
Fuel viscosity	μ_{fuel}	2.70E-05	kg/(m*s)	Aspen Plus database
Inlet solid mass flowrate	F_s	0.277	kg/s	Ref [2]
Inlet solid mass percentage (NiO)	NiO inlet	98	%w/w	Ref [2]
Inlet solid mass percentage (Ni)	Ni inlet	2	%w/w	Ref [2]
Particle diameter	d_p	8.00E-05	m	Ref [4]
Particle density	ρ_s	6820	kg/m ³	Aspen Plus database
Superficial gas velocity at minimum fluidization	U_{mf}	0.0096	m/s	Calculated
Gas voidage at minimum fluidization	ϵ_{mf}	0.5	-	Ref [2]
Bubble diameter	d_b	0.03	m	Ref [8]
Inlet superficial gas velocity	U_o	0.096	m/s	Assumed
Volumetric fraction of the bubble phase	σ	0.191	-	Calculated

Bubble superficial gas velocity	U_b	0.463	m/s	Calculated
Emulsion superficial gas velocity	U_e	0.019	m/s	Calculated
Height of the packed solid loading	L_m	1	m	Ref [2]
Gas voidage in bubble phase	ϵ_b	0.9	-	Ref [2]
Gas voidage in emulsion phase	ϵ_e	0.5	-	Ref [2]
Mass transfer coefficient between bubble and cloud	K_{bc}	9.57	s^{-1}	Calculated
Mass transfer coefficient between cloud and emulsion	K_{ce}	4.61	s^{-1}	Calculated
Mass transfer coefficient between bubble and emulsion	K_{be}	3.11	s^{-1}	Calculated
Kinetic pre-exponential factor	k_s	4.41E-04	m/s	Ref [4]
Kinetic pre-exponential factor in PFR reactors	k_{PFR}	33.08	s^{-1}	Calculated
Kinetic pre-exponential factor in CSTR reactors	k_{CSTR}	3.68	s^{-1}	Calculated
Diffusion coefficient	δ	6.5E-05	m^2/s	Aspen Plus database
Bubble volume in the i stage	V_{bi}	0.189	m^3	Calculated
Emulsion volume in the i stage	V_{ei}	0.802	m^3	Calculated

2. เครื่องปฏิกรณ์อากาศ

เครื่องปฏิกรณ์อากาศดำเนินการในสภาวะฟลูอิดเซชันแบบความเร็วสูงประกอบด้วยสองวัฏภาค ได้แก่ วัฏภาคส่วนหนาแน่น (Dense phase) และวัฏภาคส่วนเบาบาง (Lean phase) ซึ่งเป็นช่วงการไหลที่มีความเร็วบ่อนเข้ามาสูงกว่าความเร็วปลายของอนุภาค โดยกำหนดให้เกิดการผสมกันอย่างสมบูรณ์ (Perfect mixing) ในแต่ละวัฏภาค และสัดส่วนของแข็ง (Solid voidage) ในวัฏภาคที่ปริมาณเบตหนาแน่นคงที่ ในขณะที่วัฏภาคที่ปริมาณเบตเบาบางเกิดการลดลงของสัดส่วนของแข็ง

ในงานวิจัยนี้ ได้ใช้ข้อมูลในตารางที่ 2 ในการสร้างแบบจำลองเครื่องปฏิกรณ์อากาศ ซึ่งเป็นพารามิเตอร์ที่สำคัญต่อการออกแบบเครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงที่ดำเนินการในสภาวะฟลูอิดเซชันแบบความเร็วสูง

ตารางที่ 2 ตัวแปรที่ใช้ในการออกแบบเครื่องปฏิกรณ์อากาศ

Name	Parameters	Value	Units	Source
Operating temperature	T	750	°C	Ref [2]
Operating pressure	P	1	atm	Ref [2]
Air density	ρ_{air}	0.239	kg/m ³	Aspen Plus database
Air viscosity	μ_{air}	4.70E-05	kg/(m*s)	Aspen Plus database
Particle diameter	d_p	8.00E-05	m	Ref [2]
Particle density	ρ_s	6033	kg/m ³	Aspen Plus database
Superficial gas velocity at minimum fluidization	U_{mf}	0.0204	m/s	Calculated
Inlet superficial gas velocity	U_o	0.204	m/s	Calculated
Decay index	a	9	s ⁻¹	Ref [2]
Solid voidage in the dense phase	ϵ_{sd}	0.16	-	Ref [2]
Solid voidage at the exit of fluidize bed	ϵ_s^*	0	-	Ref [2]
Height of the packed solid loading	L_m	0.25	m	Ref [2]
Height of the riser	H_R	3.5	m	Ref [2]
Diameter of the riser	D_R	0.8	m	Ref [2]
Kinetic pre-exponential factor	k_s	7.0E+07	m/s	Assumed

3.ปฏิกิริยารีดักชันและปฏิกิริยาออกซิเดชัน

ปฏิกิริยารีดักชันเกิดขึ้นในเครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงและปฏิกิริยาออกซิเดชันเกิดขึ้นในเครื่องปฏิกรณ์อากาศเป็นปฏิกิริยาวิวิธพันธุ์ (Heterogeneous reaction) ระหว่างวัฏภาคของแข็งและวัฏภาคแก๊ส โดยปฏิกิริยารีดักชันเกิดขึ้นระหว่างโลหะนิกเกิลออกไซด์ (NiO) กับ แก๊สมีเทน (CH₄) ได้ผลิตภัณฑ์เป็นแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์ (CO₂) ไอน้ำ (H₂O) และโลหะนิกเกิล ดังสมการที่ 1 ปฏิกิริยาออกซิเดชันเกิดขึ้นระหว่างโลหะนิกเกิล (Ni) กับแก๊สออกซิเจนในอากาศ ได้ผลิตภัณฑ์เป็นโลหะนิกเกิลออกไซด์ ดังสมการที่ 2



จากแบบจำลองแกนหดตัว (Shrinking core model) [5] จะสามารถหาอัตราการเกิดปฏิกิริยาที่เกิดขึ้นได้
 ดังสมการที่ 3 สมการที่ 4 และสมการที่ 5

$$r = \frac{4 \cdot \pi \cdot r_c^2 \cdot V_{\text{tot}} \cdot (1 - \epsilon) \cdot k_s \cdot C_A}{\frac{4}{3} \cdot \pi \cdot R^3 \cdot V_{\text{tot}} \cdot \epsilon} \quad (3)$$

$$r_c = R \cdot (1 - X_B)^{\frac{1}{3}} \quad (4)$$

$$r = \frac{6 \cdot (1 - \epsilon) \cdot k_s \cdot C_A \cdot (1 - X_B)^{\frac{2}{3}}}{d_p \cdot \epsilon} = k_o \cdot C_A \cdot (1 - X_B)^{\frac{2}{3}} \quad (5)$$

โดยมีสมมุติฐานของการเกิดปฏิกิริยา [6] ดังต่อไปนี้

- อนุภาคเป็นทรงกลมและขนาดคงที่
- การถ่ายโอนมวลสารภายนอก (External mass transfer) มีความเร็วมากกว่าการถ่ายโอนมวลสารภายใน (Internal mass transfer)
- ปฏิกิริยาเกิดที่อุณหภูมิคงที่ (Isothermal)

จากตารางที่ 3 แสดงค่าจลนพลศาสตร์ เพื่อใช้ในการหาค่าคงที่ของการเกิดปฏิกิริยาและ
 กฎทางกำลังจลนพลศาสตร์ (Power law kinetics model) ที่ใช้ในแบบจำลองกระบวนการ ดังแสดงในสมการที่ 6 และ
 สมการที่ 7 [9]

$$k = k_o T^n e^{\frac{-E_a}{RT}} \quad (6)$$

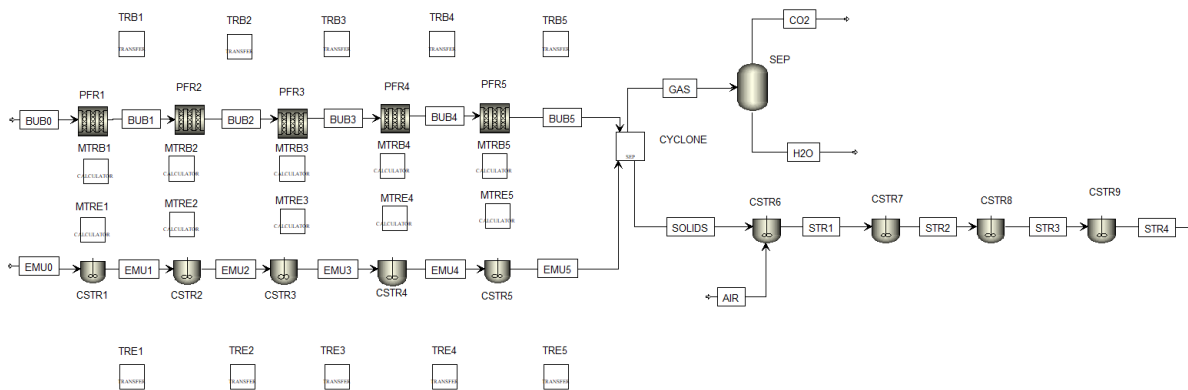
$$r = k T^n e^{\frac{-E_a}{RT}} \Pi_i C_i^{\alpha_i} \quad (7)$$

ตารางที่ 3 ตัวแปรจลนพลศาสตร์ของปฏิกิริยารีดักชันและปฏิกิริยาออกซิเดชัน ของ Abad และคณะ [3]

	Reduction reaction	Oxidation reaction	Units
Activation energy E_a	78000	7000	kJ/kmol
Order of reaction n	0.8	0.2	-

4. แบบจำลองกระบวนการแอสเฟนพลัส

แบบจำลองกระบวนการเครื่องปฏิกรณ์ฟลูอิดไคซ์เบดแบบเบตหมุนเวียน เลือกใช้ Property method แบบ NRTL จากรูปภาพที่ 1 แสดงแบบจำลองเครื่องปฏิกรณ์แบบเบตหมุนเวียน สำหรับกระบวนการเผาไหม้แบบเคมีคอลลูบึง ซึ่งสามารถแบ่งออกเป็น 3 ส่วนคือ เครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิง เครื่องปฏิกรณ์อากาศ และเครื่องควบแน่นไอน้ำ เครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงประกอบด้วยเครื่องปฏิกรณ์แบบถังกวนผสม (Continuously Stirred Tank Reactor; CSTR) ต่ออนุกรมกันจำนวน 5 เครื่อง และเครื่องปฏิกรณ์แบบท่อไหล (Plug Flow Reactor; PFR) ต่ออนุกรมกันจำนวน 5 เครื่อง เชื่อมต่อกับไซโคลน เพื่อคัดแยกอนุภาคของแข็งไปยังเครื่องปฏิกรณ์อากาศ ซึ่งประกอบด้วยเครื่องปฏิกรณ์แบบถังกวนผสมต่ออนุกรมกันจำนวน 4 เครื่อง และป้อนแก๊สหลังการเผาไหม้เข้าสู่เครื่องควบแน่นไอน้ำ



รูปภาพที่ 1 แบบจำลองเครื่องปฏิกรณ์ฟลูอิดไคซ์เบดแบบเบตหมุนเวียน

4.1 การจำลองฟลูอิดเซชันแบบฟองแก๊ส

การจำลองฟลูอิดเซชันแบบฟองแก๊สจะประกอบด้วย 2 ภูมิภาค ได้แก่ ภูมิภาคฟองแก๊สและภูมิภาคอิมัลชัน ในงานวิจัยนี้ ใช้การต่ออนุกรมของเครื่องปฏิกรณ์แบบถังกวนผสม (Continuously Stirred Tank Reactor; CSTR) สำหรับภูมิภาคอิมัลชัน และใช้การต่ออนุกรมของเครื่องปฏิกรณ์แบบท่อไหล (Plug Flow Reactor; PFR) สำหรับภูมิภาคฟองแก๊ส และเครื่องปฏิกรณ์ทั้งสองแบบต่อแบบคู่ขนานกันไปดังแสดงในรูปภาพที่ 1 จากสมการที่ 8 และ 9 แสดงค่าความเข้มข้นของแก๊สมีเทน ที่ออกจากเครื่องปฏิกรณ์ทั้งสองแบบในแต่ละขั้นตอน สมการที่ 8 และ 9 ถูกป้อนลงในโปรแกรมแอสเฟนพลัสด้วยการเขียนรหัสในภาษาฟอร์แทรน (Fortran) ลงในกล่องการคำนวณ (Calculator block) เพื่อระบุค่าการถ่ายโอนมวลสารระหว่างสองภูมิภาค ในกรณีนี้สนใจการถ่ายโอนมวลสารเฉพาะแก๊สมีเทนเท่านั้นเนื่องจากว่าแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์และไอน้ำที่ได้ไม่มีผลต่ออัตราการเกิดปฏิกิริยา และใช้กล่องการถ่ายโอนข้อมูล (Transfer block) เพื่อให้การตุลมวลสารมีความต่อเนื่อง

$$C_{CH4b(i+1)} = C_{CH4bi} - K_{be}(C_{CH4bi} - C_{CH4ei}) V_{bi} \quad (8)$$

$$C_{CH4e(i+1)} = C_{CH4ei} - K_{be}(C_{CH4bi} - C_{CH4ei}) V_{ei} \left(\frac{\sigma}{1-\sigma} \right) \quad (9)$$

ใช้สมการที่ 10 และ 11 เมื่อค่าอัตราการป้อนไหลของแก๊สมีเทนที่คำนวณจากสมการที่ 8 และ 9 มีค่าติดลบ

$$C_{CH4b(i+1)} = \frac{1}{2} * (C_{CH4bi} + C_{CH4ei} * \frac{Q_e}{Q_b}) \quad (10)$$

$$C_{CH4e(i+1)} = \frac{1}{2} * (C_{CH4ei} + C_{CH4bi} * \frac{Q_b}{Q_e}) \quad (11)$$

และใช้สมการที่ 12, 13 และ 14 ในการหาค่าสัมประสิทธิ์การถ่ายโอนมวลสารระหว่างวัฏภาคแก๊สและวัฏภาคอิมัลชัน ดังต่อไปนี้

$$K_{bc} = 4.5 \left(\frac{U_e}{d_b} \right) + 5.85 \left(\frac{\delta^{0.5} g^{0.25}}{d_b^{\frac{5}{4}}} \right) \quad (12)$$

$$K_{ce} = 6.77 \left(\frac{\delta \epsilon_{mf} 0.711 (g d_b)^{0.5}}{d_b^3} \right)^{0.5} \quad (13)$$

$$\frac{1}{K_{be}} = \frac{1}{K_{ce}} + \frac{1}{K_{bc}} \quad (14)$$

4.2 การจำลองฟลูอิดเซชันแบบความเร็วสูง

การจำลองฟลูอิดเซชันแบบความเร็วสูงประกอบด้วย 2 วัฏภาค ได้แก่ วัฏภาคส่วนหนาแน่น (Dense phase) และวัฏภาคส่วนเบาบาง (Lean phase) ซึ่งมีการเปลี่ยนแปลงของสัดส่วนของแข็งตลอดความสูงของเบด และมีค่าลดลงตามความสูงปลดปล่อยอิสระในท่อขนส่ง (Transport Disengaging Height ;TDH) [6] เครื่องปฏิกรณ์ถูกแบ่งเป็น 4 ช่วงจำลองโดยใช้เครื่องปฏิกรณ์แบบถังกวนสมบูรณ์ (Continuously Stirred Tank Reactor; CSTR) จำนวน 4 เครื่องต่อกันแบบอนุกรมดังแสดงในรูปภาพที่ 1 ช่องว่างตามความสูงเบดภายในเครื่องปฏิกรณ์คำนวณจากสมการ 15 และ 16 ถึงกวนสมบูรณ์เครื่องแรกแทนวัฏภาคของเบดหนาแน่น ส่วนเครื่องปฏิกรณ์แบบถังกวนสมบูรณ์ที่เหลือแทนวัฏภาคของเบดเบาบาง โดยที่ z_i คือความสูงแต่ละช่วงของเครื่องปฏิกรณ์

$$\epsilon_{si} = \epsilon_s^* - \frac{(\epsilon_{sd} - \epsilon_s^*)}{a(z_i - z_{i-1})} (e^{-az_i} - e^{-az_{i-1}}) \quad (15)$$

$$\Delta z = z_2 - z_1 = z_3 - z_2 = z_4 - z_3 \text{ และ } z_4 = z_3 - 3 * \Delta z \quad (16)$$

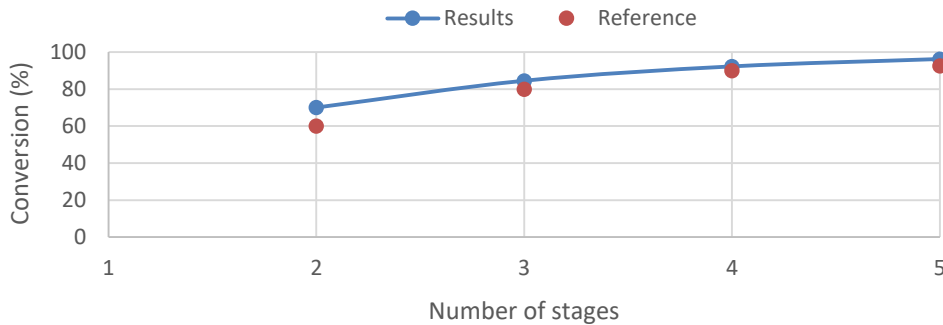
4.3 เครื่องควบแน่นไอน้ำ

แก๊สที่เกิดขึ้นหลังการเผาไหม้ภายในเครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงจะประกอบด้วยแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์ ไอน้ำและแก๊สมีเทนที่เหลือจากการเผาไหม้ ซึ่งดำเนินการที่อุณหภูมิ 30 °C ความดัน 1 บรรยากาศเพื่อแยกให้ได้แก๊สคาร์บอนไดออกไซด์ออกจากไอน้ำ ดังแสดงในรูปภาพที่ 1

5. ผลการทดลองและวิจารณ์ผลการทดลอง

5.1 ตรวจสอบความถูกต้องของแบบจำลอง

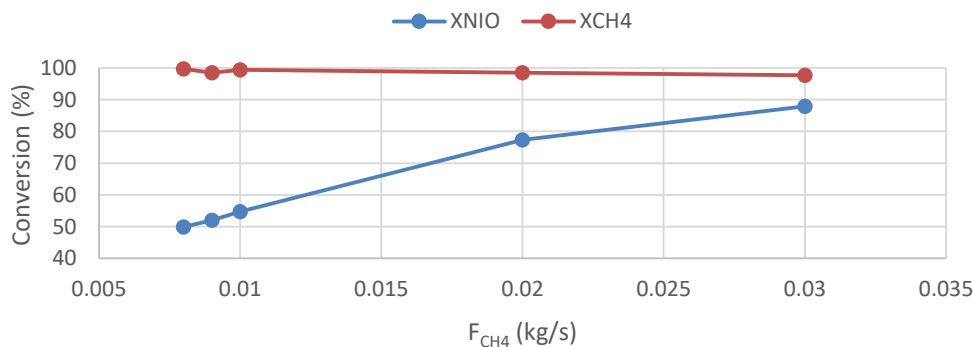
เพื่อตรวจสอบความถูกต้องของแบบจำลองที่พัฒนาขึ้น ร้อยละการเปลี่ยนแปลง (Conversion) ของแก๊สมีเทน ที่ได้จากการจำลองโดยใช้แบบจำลองที่พัฒนาขึ้น ถูกนำมาเปรียบเทียบกับข้อมูลในเอกสารอ้างอิง พบว่า แนวโน้มการเปลี่ยนแปลงสอดคล้องกับผลงานวิจัยของ Porrazzo และคณะ [2]



รูปภาพที่ 2 เปรียบเทียบร้อยละการเปลี่ยนแปลงของแก๊สมีเทนจากแบบจำลองกับข้อมูลจากเอกสารอ้างอิง

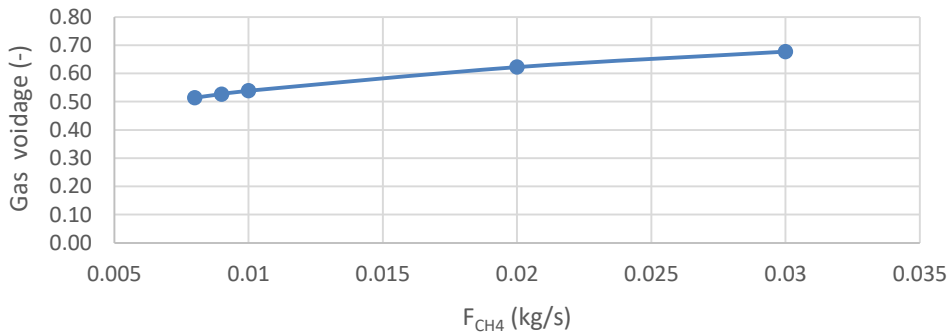
5.2 ผลของอัตราป้อนมีเทนต่อการเปลี่ยนแปลงสารในเครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงและเครื่องปฏิกรณ์อากาศ

จากรูปภาพที่ 3 จะพบว่าการเปลี่ยนแปลงอัตราการป้อนแก๊สมีเทน จะส่งผลต่อร้อยละการเปลี่ยนแปลงของโลหะ निकเกิลออกไซด์ โดยการเพิ่มอัตราการป้อนแก๊สมีเทนทำให้เพิ่มอัตราการเกิดปฏิกิริยารีดักชัน ส่งผลให้ร้อยละการเปลี่ยนแปลงของโลหะ निकเกิลออกไซด์มากขึ้น



รูปภาพที่ 3 ผลของอัตราการป้อนไหลของแก๊สมีเทนต่อร้อยละการเปลี่ยนแปลงของโลหะ निकเกิลออกไซด์และของแก๊สมีเทน

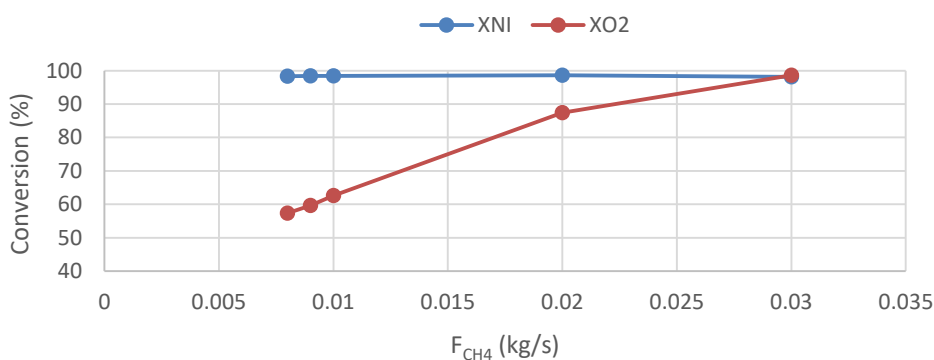
จากรูปภาพที่ 4 จะพบว่าการเปลี่ยนแปลงอัตราการป้อนแก๊สมีเทน จะส่งผลต่อสัดส่วนช่องว่างจากการขยายตัวของเบต โดยการเปลี่ยนแปลงอัตราการป้อนแก๊สมีเทนจะทำให้สัดส่วนช่องว่างขยายตัวเพิ่มขึ้น ซึ่งค่า สัดส่วนช่องว่างจากการขยายตัวของเบตจะต้องอยู่ที่ประมาณ 0.4- 0.6 (จาก Kunii และ Levenspiel) [6] จึงจะสามารถดำเนินการฟลูอิดาเซชันแบบฟองแก๊สได้ ส่งผลให้การเพิ่มอัตราการป้อนแก๊สมีเทนมี



ข้อจำกัด

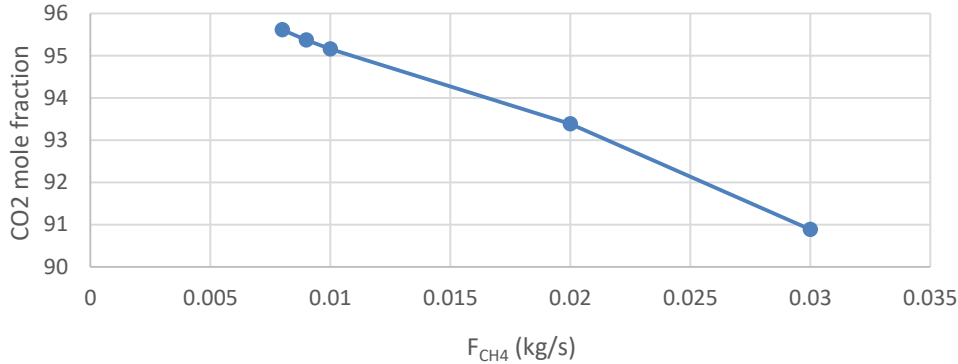
รูปภาพที่ 4 ผลของอัตราการป้อนแก๊สมีเทนต่อสัดส่วนช่องว่างจากการขยายตัวของเบต

จากรูปภาพที่ 5 จะพบว่าการเปลี่ยนแปลงอัตราการป้อนแก๊สมีเทน จะส่งผลต่อร้อยละการเปลี่ยนแปลงของแก๊สออกซิเจน โดยเมื่อเพิ่มอัตราการป้อนแก๊สมีเทน จะส่งผลให้มีปริมาณการป้อนเข้าของโลหะนิกเกิลที่ เครื่องปฏิกรณ์อากาศมากขึ้น จึงเป็นการเพิ่มอัตราการเกิดปฏิกิริยาออกซิเดชัน ทำให้ร้อยละการเปลี่ยนแปลงของอากาศเพิ่มมากขึ้น



รูปภาพที่ 5 ผลของอัตราการป้อนแก๊สมีเทนต่อร้อยละการเปลี่ยนแปลงของโลหะนิกเกิลและแก๊สออกซิเจน

จากรูปภาพที่ 6 จะพบว่าการเปลี่ยนแปลง อัตราการป้อนแก๊สมีเทน จะส่งผลให้ ประสิทธิภาพในการแยกแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์ที่บริเวณเครื่องควบแน่นไอน้ำลดลง เนื่องจากมีแก๊สมีเทนเหลือจากการเผาไหม้เจือปนเพิ่มมากขึ้น จึงทำให้สัดส่วนโดยโมลของแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์ลดลง



รูปภาพที่ 6 ผลของอัตราการป้อนแก๊สมีเทนต่อสัดส่วนโดยโมลของแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์

สรุปผลการทดลอง

งานวิจัยชิ้นนี้ เป็นการศึกษาการการจำลองเครื่องปฏิกรณ์ฟลูอิดเบดแบบหมุนเวียนสำหรับกระบวนการเผาไหม้แบบเคมีคอลลูบปิง ด้วยโปรแกรมจำลองแอสเพนพลัส ซึ่งภายในกระบวนการประกอบไปด้วยเครื่องปฏิกรณ์เชื้อเพลิงที่ดำเนินการในสภาวะฟลูอิดเซชันแบบฟองแก๊ส เครื่องปฏิกรณ์อากาศที่ดำเนินการในสภาวะฟลูอิดเซชันแบบความเร็วสูง และเครื่องควบแน่นไอน้ำ พบว่าการเพิ่มปริมาณการป้อนแก๊สมีเทน ส่งผลให้ร้อยละการเปลี่ยนแปลงของโลหะ निकเกิลออกไซด์เพิ่มขึ้น แต่การเปลี่ยนแปลงอัตราการป้อนของแก๊สมีเทนจะส่งผลต่อช่วงการดำเนินการของระบบฟลูอิดเบด เนื่องจากการเปลี่ยนแปลงของสัดส่วนช่องว่างจากการขยายตัวของเบต นอกจากนี้ปัจจัยที่ต้องคำนึงถึงคือปริมาณการเกิดปฏิกิริยาการคืนสภาพของโลหะ निकเกิลออกไซด์ ซึ่งการเพิ่มอัตราการป้อนเชื้อเพลิงทำให้มีปริมาณโลหะ निकเกิลเข้าสู่เครื่องปฏิกรณ์อากาศมากขึ้น ส่งผลให้ร้อยละการเปลี่ยนแปลงของอากาศมากขึ้น โดยจะเกิดการหมุนเวียนของเบตได้ถ้าสามารถคืนสภาพโลหะ निकเกิลออกไซด์ได้เกือบทั้งหมด ส่วนสุดท้ายที่จะต้องคำนึงถึงคืออัตราส่วนโดยโมลของแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์ในแก๊สเผาไหม้ การเพิ่มอัตราการป้อนเชื้อเพลิงทำให้มีปริมาณแก๊สมีเทนเหลือจากการเผาไหม้เจือปนเพิ่มมากขึ้น จึงทำให้สัดส่วนโดยโมลของแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์ลดลง

กิตติกรรมประกาศ

ขอขอบคุณ ภาควิชาเคมีเทคนิค คณะวิทยาศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย สำหรับสถานที่ในการดำเนินการวิจัย รวมทั้งนิสิตระดับมหาบัณฑิต และดุษฎีบัณฑิต ที่คอยช่วยเหลือและให้คำแนะนำในการทำวิจัย

ขอขอบคุณศูนย์ความเป็นเลิศด้านเทคโนโลยี และวัสดุ สำหรับเงินทุนสำหรับการทำวิจัย

สมการอ้างอิง

$$F_{\text{fuel}} = \frac{P_{\text{fuel}}}{LHV} \quad (A1)$$

$$G_a = \frac{d_p^3 \rho_s (\rho_s - \rho_g) g}{\mu_g^2} \quad (A2)$$

$$Re_{mf} = [(33.7)^2 + 0.0408 G_a]^{0.5} - 33.7 \quad (A3)$$

$$U_{mf} = \frac{Re_{mf} \mu_g}{d_p \rho_g} \quad (A4)$$

$$d_p^* = d_p \left[\frac{\rho_g (\rho_s - \rho_g) g}{\mu_g^2} \right]^{0.33} \quad (A5)$$

$$U_t^* = \left[\frac{18}{(d_p^*)^2} + \frac{0.591}{(d_p^*)^{0.5}} \right]^{-1} \quad (A6)$$

$$U_t = U_t^* \left[\frac{\mu_g (\rho_s - \rho_g)}{\rho_g^2} \right]^{0.33} \quad (A7)$$

$$U_o = 10 U_{mf} \quad (A8)$$

$$U_e \approx \frac{U_{mf}}{\varepsilon_{mf}} \quad (A9)$$

$$U_{br} = 0.711 * (g * d_b)^{0.5} \quad (A10)$$

$$U_b = U_o - U_e + U_{br} \quad (A11)$$

$$\sigma = \frac{U_o - U_{mf}}{U_b - U_{mf}} \quad (A12)$$

$$A_{FR} = \frac{F_{fuel}}{U_o \rho_{fuel}} \quad (A13)$$

$$\varepsilon_f = \sigma \varepsilon_b + (1 - \sigma) \varepsilon_e \quad (A14)$$

$$L_f = \frac{L_m (1 - \varepsilon_m)}{(1 - \varepsilon_{mf})} \quad (A15)$$

$$V_{tot} = L_f A_{FR} \quad (A16)$$

$$V_b = V_{tot} \sigma \quad (A17)$$

$$V_e = V_{tot} (1 - \sigma) \quad (A18)$$

$$V_{PFR} = V_b \varepsilon_b \quad (A19)$$

$$V_{CSTR} = V_e \varepsilon_e \quad (A20)$$

$$V_{PFR(i)} = \frac{V_{PFR}}{n_{stages}} \quad (A21)$$

$$V_{CSTR(i)} = \frac{V_{CSTR}}{n_{stages}} \quad (A22)$$

$$F_{sb} = F_s \sigma (1 - \varepsilon_b) \quad (A23)$$

$$F_{se} = F_s - F_{sb} \quad (A24)$$

$$\mathbf{F}_b = \rho_{\text{fuel}} \mathbf{U}_b \mathbf{A}_{\text{FR}} \sigma \quad (\text{A25})$$

$$\mathbf{F}_e = \rho_{\text{fuel}} \mathbf{U}_{\text{mf}} \mathbf{A}_{\text{FR}} (1 - \sigma) \quad (\text{A26})$$

เอกสารอ้างอิง

- [1] Jafari, R., R. Sotudeh-Gharebagh, and N. Mostoufi, *Modular simulation of fluidized bed reactors*. Chemical Engineering and Technology, 2004. 27(2): p. 123-129.
- [2] Porrazzo, R., G. White, and R. Ocone, *Aspen Plus simulations of fluidised beds for chemical looping combustion*. Fuel, 2014. 136: p. 46-56.
- [3] Abad, A., et al., *Mapping of the range of operational conditions for Cu-, Fe-, and Ni-based oxygen carriers in chemical-looping combustion*. Chemical Engineering Science, 2007. 62(1): p. 533-549.
- [4] Ryu, H.J., et al., *Oxidation and Reduction Characteristics of Oxygen Carrier Particles and Reaction Kinetics by Unreacted Core Model*. Korean Journal of Chemical Engineering, 2001. 18(6): p. 831-837.
- [5] Levenspiel, O., *Chemical reaction engineering*. 1999: Wiley.
- [6] Kunii, D. and O. Levenspiel, *Fluidization engineering*. 2013: Elsevier.
- [7] Davidson, J., D. Harrison, and R. Jackson, *Fluidized particles: Cambridge University Press*, 1963. 155 pp. 1964, Pergamon.
- [8] Mattisson, T., A. Lyngfelt, and P. Cho, *The use of iron oxide as an oxygen carrier in chemical-looping combustion of methane with inherent separation of CO₂*. Fuel, 2001. 80(13): p. 1953-1962.
- [9] Al-Malah, K.I.M., *Aspen Plus: Chemical Engineering Applications*. 2016: Wiley.